

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 2004082663
PUBLICATION DATE : 18-03-04

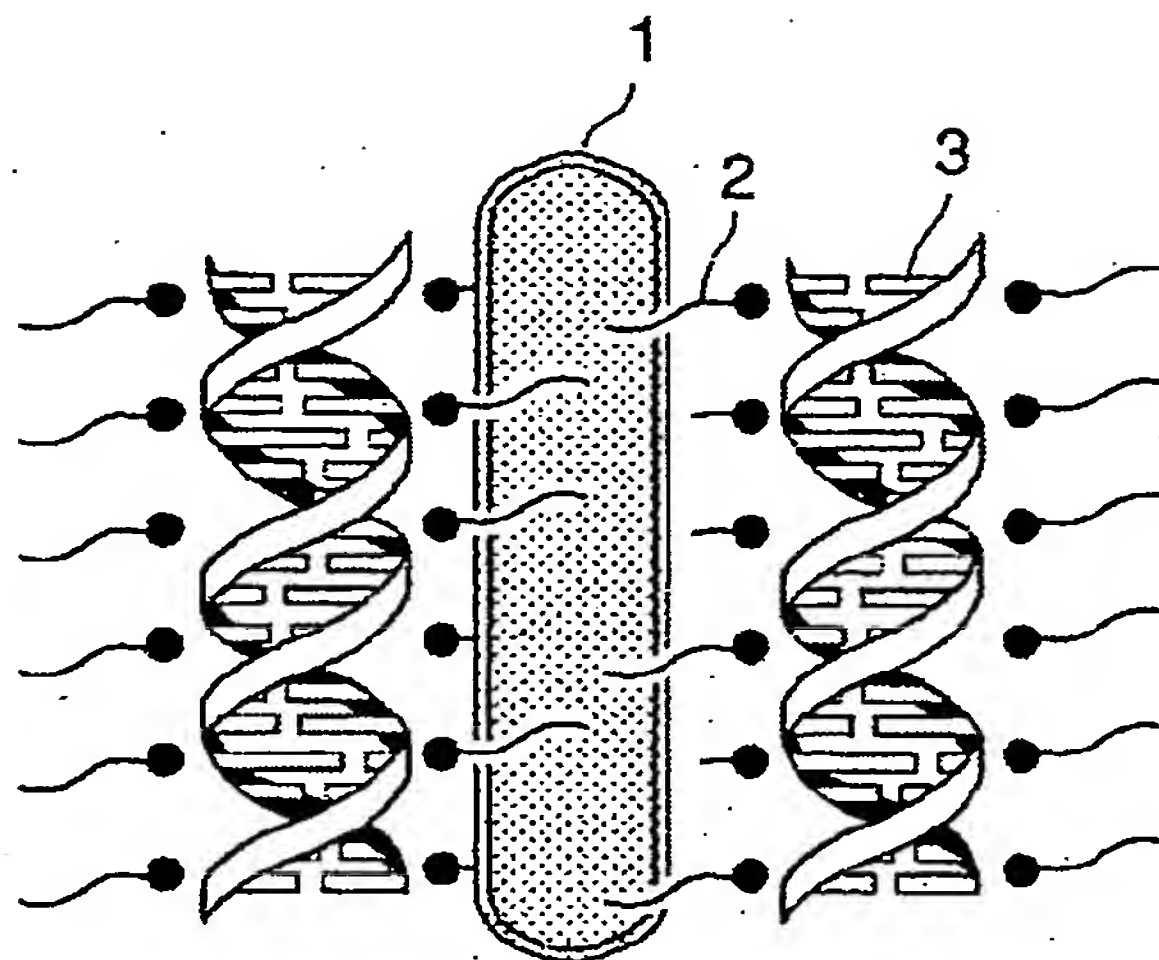
APPLICATION DATE : 29-08-02
APPLICATION NUMBER : 2002250213

APPLICANT : SOGO PHARMACEUTICAL CO LTD;

INVENTOR : OKAHATA SHIGEO;

INT.CL. : B32B 9/00 C08J 5/18 C08K 3/04
C08L101/00

TITLE : CARBON NANOTUBE/LIPID/MATRIX
COMPLEX FILM CONTAINING DNA
COMPLEX AND PRODUCTION
METHOD USED FOR THE SAME



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electrically conductive film, a liquid crystal film, a photoelectric conversion film such as an EL element and a solar cell, and a functional film such as a polymer material.

SOLUTION: A specified amount of carbon nanotube 1 is added to a solution of cationic lipid 2 and irradiated with ultrasonic waves. Thus, the carbon nanotube 1 is dispersed in the solution of the cationic lipid 2 through hydrophobic interaction to obtain carbon nanotube lipid dispersing solution. DNA 3 is added to the carbon nanotube lipid dispersing solution to combine a phosphorous acid anion of the DNA 3 and cationic lipid 2 therein in the equivalent ratio 1:1 by electrostatic interaction. Thus, a matrix complex which has a lipid/DNA complex as the matrix and contains a carbon nanotube/lipid/DNA complex is obtained, and the obtained matrix complex is formed into a film. A conductive network of the carbon nanotube is formed and the DNA double-strand structure is maintained without destruction.

COPYRIGHT: (C)2004,JPO

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-82663

(P2004-82663A)

(43) 公開日 平成16年3月18日(2004.3.18)

(51) Int.Cl.⁷

B32B 9/00
C08J 5/18
C08K 3/04
C08L 101/00

F1

B32B 9/00 A
C08J 5/18 CFJ
C08K 3/04
C08L 101/00

テーマコード (参考)

4F071
4F100
4J002

審査請求 未請求 請求項の数 13 OL (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願2002-250213 (P2002-250213)
(22) 出願日 平成14年8月29日 (2002.8.29)

特許法第30条第1項適用申請有り 平成14年3月1
1日 社団法人日本化学会発行の「日本化学会第81春
季年会 講演予稿集1」に発表

(71) 出願人 591222566
相互薬工株式会社
東京都千代田区大手町2丁目6番2号
(74) 代理人 100079256
弁理士 片桐 光治
(72) 発明者 岡畑 恵雄
神奈川県川崎市麻生区虹ヶ丘1丁目2番1
1号

Fターム(参考) 4F071 AA04 AA08 AA54 AB03 AC03
AF37 AH19 BA01 BB03 BB07
BC07
4F100 AD11A AJ08B AS00C BA03 BA10A
BA10B EJ003 EJ202 EJ251 EJ373
GB41 JA20 JB09 JG01 JL00
YY00

最終頁に続く

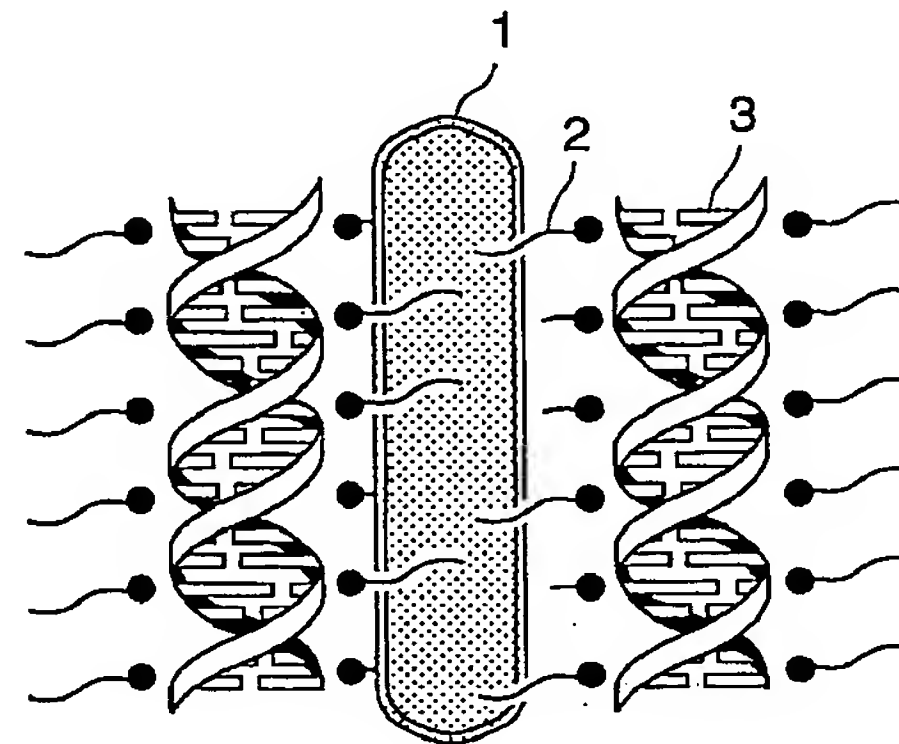
(54) 【発明の名称】 カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムおよびその製造方法

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 導電性フィルム、液晶フィルム、EL素子や太陽電池などの光電変換膜、高分子材料などの機能性フィルムの提供。

【解決手段】 カチオン性脂質2水溶液中に一定量のカーボンナノチューブ1を添加し、次いで超音波を照射し、疎水性相互作用により該カチオン性脂質水溶液中にカーボンナノチューブを分散させてカーボンナノチューブ・脂質分散液を得、DNA3を加えてDNAのリン酸アニオンとカーボンナノチューブ・脂質分散液中のカチオン性脂質2とを1対1の当量比で静電的相互作用により結合させて得られる、脂質/DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体を含有するマトリックス複合体をフィルム成形してなり、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルム。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項1】

疎水基および親水基を有するカチオン性脂質水溶液中に一定量のカーボンナノチューブを添加し、次いで超音波を照射し、疎水性相互作用により該カチオン性脂質水溶液中にカーボンナノチューブを分散させてカーボンナノチューブ・脂質分散液を得、DNAを加えてDNAのリン酸アニオンとカーボンナノチューブ・脂質分散液中のカチオン性脂質とを1対1の当量比で静電的相互作用により結合させて得られる、脂質/DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体を含有するマトリックス複合体をフィルム成形してなり、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルム。

10

【請求項2】

該フィルム成形が熱プレス法によって行なわれる請求項1記載のフィルム。

【請求項3】

請求項1または2記載のフィルムを一定方向に延伸してなり、該DNAの二重らせん鎖が延伸方向に配向され、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成されている水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルム。

【請求項4】

該カーボンナノチューブが、単層カーボンナノチューブであることを特徴とする請求項1乃至3のいずれかに記載のフィルム。

20

【請求項5】

該カチオン性脂質が、アルキル型カチオン性脂質、ジアルキル型カチオン性脂質および芳香族環含有カチオン性脂質からなる群から選ばれる少なくとも1種のカチオン性脂質である請求項1乃至4のいずれかに記載のフィルム。

【請求項6】

該DNAが、天然DNA、合成DNA、天然RNA、合成RNA、DNA/RNAハイブリッド、およびDNA・RNA以外のアニオン性高分子よりなる群から選ばれる少なくとも1種のDNAである請求項1乃至4のいずれかに記載のフィルム。

30

【請求項7】

該マトリックス複合体中のカーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体の含有量がカーボンナノチューブとして0.5～10.0重量%の範囲にある請求項1乃至6のいずれかに記載のフィルム。

【請求項8】

順次、疎水基および親水基を有するカチオン性脂質水溶液中に、一定量のカーボンナノチューブを添加し、超音波を照射して疎水性相互作用により該カチオン性脂質水溶液中にカーボンナノチューブを分散させてカーボンナノチューブ・脂質分散液を得、DNAを加えてDNAのリン酸アニオンとカーボンナノチューブ・脂質分散液中のカチオン性脂質とを1対1の当量比で静電的相互作用により結合させて脂質/DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体を含有するマトリックス複合体を得、得られたマトリックス複合体をフィルム成形することによりなり、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの製造方法。

40

【請求項9】

請求項8記載のフィルムをさらに一定方向に延伸することによりなり、DNAの二重らせん鎖を延伸方向に配向させることによりなり、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの製造方法。

50

【請求項10】

請求項8記載のフィルムを膨潤させた後、延伸する請求項9記載の製造方法。

【請求項11】

該カーボンナノチューブが単層カーボンナノチューブである請求項8乃至10のいずれかに記載の製造方法。

【請求項12】

該カチオン性脂質が請求項5に記載の脂質である請求項8乃至11のいずれかに記載の製造方法。

【請求項13】

該DNAが請求項6に記載のDNAである請求項8乃至11のいずれかに記載の製造方法 10

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体－脂質／DNA複合体混合フィルムおよびその製造方法に関する。本発明のフィルムは、導電性フィルム、液晶フィルム、EL素子や太陽電池などの光電変換膜、高分子材料などの機能性フィルムとして利用することができ、

【0002】

【従来技術およびその課題】

カーボンナノチューブをフィルム化する方法として、Smallらは、カーボンナノチューブの懸濁液をポリテトラフルオロエチレン（PTFE）フィルターに通すことで、PTFEフィルター上に残ったカーボンナノチューブを自己支持性のフィルムとして得ている（Science, 280, 1253（1998））。このフィルムは柔軟性がなく容易に折れてしまうため、機能性フィルム材料として使用することができない。

【0003】

また、高分子材料の力学的な補強や導電性の向上を目的とした高分子／カーボンナノチューブ複合体を作る試みも行われており、Ajayanらはカーボンナノチューブをエポキシ樹脂と混ぜて固めた後、厚さ200nmに薄くスライスすることで、カーボンナノチューブが配合されたフィルムを作成している（Adv. Mater., 7, 489（1995））。また、高分子材料を溶媒に溶解させ、それに対して任意の割合でカーボンナノチューブを混合して支持体上にキャストし、次いで溶媒を蒸発させることによりフィルムを得る方法もある。いずれもカーボンナノチューブが高分子材料中に分散しているに過ぎず、電導度を半導体レベルにするためにはカーボンナノチューブを多量に添加しなければならず、高分子マトリックスの特性が失われてしまう問題がある。

【0004】

【課題を解決するための手段】

本発明は、導電性フィルム、液晶フィルム、EL素子や太陽電池などの光電変換膜、高分子材料などの機能性フィルムとして利用しうる水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムおよびその製造方法を提供することを目的としている。

本発明は、第1の態様において、疎水基および親水基を有するカチオン性脂質水溶液中に一定量のカーボンナノチューブを添加し、次いで超音波を照射し、疎水性相互作用により該カチオン性脂質水溶液中にカーボンナノチューブを分散させてカーボンナノチューブ・脂質分散液を得、DNAを加えてDNAのリン酸アニオンとカーボンナノチューブ・脂質分散液中のカチオン性脂質とを1対1の当量比で静電的相互作用により結合させて得られる、脂質／DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体を含有するマトリックス複合体をフィルム成形してなり、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体フ 50

ィルム、好ましくは、さらに該フィルムを一定方向に延伸してなり、該DNAの二重らせん鎖が延伸方向に配向している水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムを提供するものである。

【0005】

本発明は、第2の態様において、順次、疎水基および親水基を有するカチオン性脂質水溶液中に、一定量のカーボンナノチューブを添加し、超音波を照射して疎水性相互作用により該カチオン性脂質水溶液中にカーボンナノチューブを分散させてカーボンナノチューブ・脂質分散液を得、DNAを加えてDNAのリン酸アニオンとカーボンナノチューブ・脂質分散液中のカチオン性脂質とを1対1の当量比で静電的相互作用により結合させて脂質／DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体を含有するマトリックス複合体を得、得られたマトリックス複合体をフィルム成形することにより、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの製造方法、好ましくは、さらに該フィルムをさらに一定方向に延伸することにより、DNAの二重らせん鎖を延伸方向に配向させることにより、カーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成された水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの製造方法を提供するものである。

【0006】

【発明の実施の形態】

本発明において使用されるカーボンナノチューブは単層カーボンナノチューブでも多層カーボンナノチューブでもよいが、カチオン性脂質水溶液に分散し易いという点で分子量が小さい単層カーボンナノチューブが好ましい。

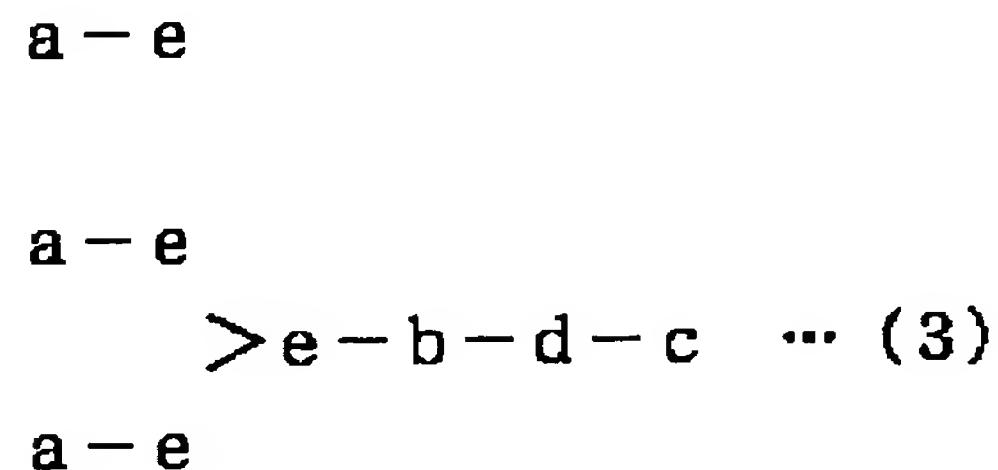
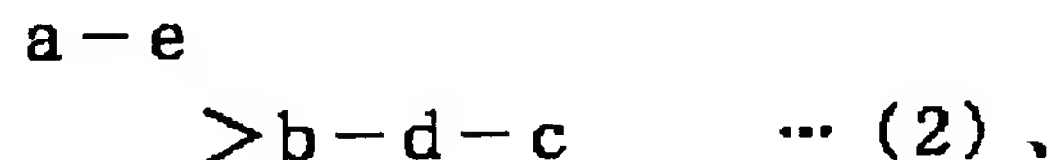
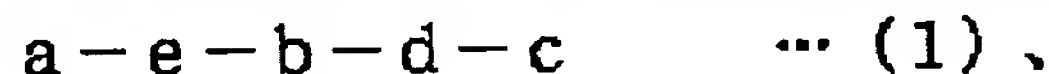
カチオン性脂質水溶液中に添加されるカーボンナノチューブの量は、マトリックス複合体に対して0.5～10.0重量％の範囲にある。

超音波照射はカーボンナノチューブをカチオン性脂質水溶液中に効率よく分散させるために行なわれるものであって、それによってカーボンナノチューブの大きさは変化しない。

【0007】

本発明におけるカチオン性脂質として、アルキル型カチオン性脂質、ジアルキル型カチオン性脂質および芳香族環含有カチオン性脂質を使用することができる。これらは1種または2種以上混合して使用することができる。

本発明で使用されるカチオン性脂質は、下記一般式(1)、(2)および(3)：



(式中、aは、柔軟なアルキル部分であり、通常は炭素鎖長が7以上のアルキル基、フルオロアルキル基、アルキレン基などの疎水基部分を表し、bは、剛直(剛曲)構造部分であり、フェニル基、アソベンゼン基、ナフタレン基、カルバゾール基、ジフェニルアソメチン基、ビフェニル基、ナフタレン基、アントラセン基、ピレン基などを表し、cは、親

10

20

30

40

50

水性頭部であり、アンモニウム基（ジメチルアンモニウム、トリメチルアンモニウム）などのカチオン性親水基を表し、 d は、スペーサー部であり、メチレン基やオリゴエチレンオキサイド鎖成分を表し、 e は、付加的な極性基であり、エステルやアミド基を表す。）で表される。

ただし、 b 、 d および e の順番は任意であるとともに、 b 、 d および e は必ずしも必要であるとは限らない。

【0008】

また、下記一般式（4）：

$c-f-c$ (4)

（式中、 c は上記の定義通りであり、 f は上記 a 、 b 、 d および e 成分から選ばれる少くとも1種以上からなり、かつ任意の順番で選ばれる。）で表される、ジカチオン性脂質もあけることができる。

本発明において、上記した疎水基および親水基を有するカチオン性脂質水溶液中に一定量のカーボンナノチューブを添加して、超音波を照射して分散させると、カーボンナノチューブの疎水的な表面とカチオン性脂質の疎水基との疎水性相互作用により、カーボンナノチューブを効率よく分散させたカーボンナノチューブ・脂質分散液が得られる。カーボンナノチューブが効率よく分散されているため、DNAを加えてフィルム成形した場合カーボンナノチューブの伝導ネットワークを形成することができる。

【0009】

本発明において、超音波照射によるカーボンナノチューブの分散は、カーボンナノチューブをカチオン性脂質水溶液中に均一に分散させる方法である限り特に限定されるものではないが、例えばバス型ソニケーターを使用して、通常の超音波照射条件下に行なわれる。

本発明において使用されるDNAの例として、細菌ウィルスの入ファージDNA、大腸菌染色体DNA、仔ウシ胸腺DNA、サケ精子由来DNAなどの天然DNA；ポリ(dA)、ポリ(dT)、ポリ(dG)、ポリ(dC)、ポリ($dA-dT$)、ポリ($dG-dC$)などに加えて合成機によって合成できる、塩基配列の異なる種々のDNAなどの合成DNA；マウス胸腺由来RNAなどの天然RNA；ポリ(A)、ポリ(T)、ポリ(G)、ポリ(U)、ポリ($A-T$)、ポリ($G-U$)などに加えて合成機によって合成できる、塩基配列の異なる種々のRNAなどの合成RNA；ポリ(dG)・ポリ(U)、ポリ(G)・ポリ(dC)、ポリ($dA-dT$)・ポリ($A-T$)などのDNA/RNAハイブリッドに加えて合成機によって合成した相補的塩基対を有するDNA/RNAハイブリッド；ポリスチレンスルホン酸やポリグルタミン酸などのアニオン性高分子などがあげられる。

【0010】

前記カーボンナノチューブ・脂質分散液と上記DNAの水溶液とを攪混合することにより、DNAのリン酸アニオンに対してカチオン性脂質が1対1の当量比で結合し、脂質/DNA複合体をマトリックスとし、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体が得られる。

上記マトリックス複合体中のカーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体の含有量は、カチオン性脂質水溶液中に添加されるカーボンナノチューブの量により調節されるが、カーボンナノチューブの量として、該複合体に対して0.5～10.0重量%の範囲にある。

【0011】

上記カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体を例えば熱プレス法などによりフィルム成形してカーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムが得られる。

【0012】

上記フィルムを好ましくは膨潤させた後、常法により一定方向に例えば3～5倍延伸してカーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成され、該DNAの二重らせん構造が破壊されずに保持されている水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ/脂質/

10

20

30

40

50

DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムが得られる。

【0013】

本発明のカーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの厚みは、熱プレス法により作成するときのカーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体の量を調節することにより、あるいは熱プレス法により作成したカーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの延伸具合を調節することにより、任意の厚さに調整することができる。

【0014】

【実施例】

以下製造例、実施例および比較例により本発明をさらに詳しく説明する。

10

製造例1

(SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体の製造)

単層カーボンナノチューブ(カーボンナノテクノロジー社製、大きさ:直径約1~2nm、長さ数μm、以下SWNTと略す)10mgに、9.1mg/mlのヘキサデシルトリメチルアンモニウムブロマイド(アルドリッチ製、以下CTABと略す)水溶液40mlを加えた。これに室温でバス型ソニケーターを用いて超音波を10分間かけ、SWNTの粉末を細かくした。スターラーで数時間攪拌した後、室温で超音波(30kHz、25W)を3分間連続照射し、その後バス型超音波を数十分かけた。分散液を3500rpmで5分間遠心し、上澄みを回収した。更に、沈殿を数mlの水で洗浄し、3500rpmで5分間再度遠心して上澄みを回収した。2つの上澄みをあわせ、カーボンナノチューブ・脂質分散液を得た。

20

【0015】

また、鮭白子由来のDNA(ニチロ製、30000塩基対)を1.0mg/mlになるように水に溶かし、DNA水溶液を得た。

DNAのリン酸アニオン部位に対してCTABを1.1当量含むように調整した、カーボンナノチューブ・脂質分散液に、上記のDNA水溶液を滴下した。滴下後、1時間ほど静かに攪拌した。生じた沈殿を、3000rpmで5分間遠心して回収した。回収した複合体を水で2回洗浄し、上澄みをデカンテーションした。凍結乾燥し、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体の黒色粉末を得た。

30

【0016】

製造例2

(SWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体の製造)

製造例1における脂質CTABに変えて、N,N,N-トリメチル-N-(3,6,9,12テトラオキサドコシル)アンモニウムブロマイド(C₁₀-4G-N⁺と略す、特開平8-239398記載の方法により製造)を用いる以外、製造例1と同様にしてSWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体を得た。

【0017】

製造例3

(SWNT/CTAB/PLGA複合体含有マトリックス複合体の製造)

製造例1におけるDNAに変えて、アニオン性高分子であるポリグルタミン酸(PLGAと略す)を用いる以外、製造例1と同様にしてSWNT/CTAB/PLGA複合体含有マトリックス複合体を得た。

40

【0018】

実施例1

(SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの作成)

厚さ100μmのポリエチレンテレフタレート(以下PETと略す)シートの上に、長方形の穴が開いている厚さ50μmのPETシートを乗せた。このシートの穴部分に、製造例1で得た、SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体粉末を、約10~15mg/cm²になるように敷き詰め、その上に厚さ100μmのPETシートを被せた。この3枚組のPETシートをプレス器に入れ、プレス圧力30MPa、プレス温

50

度60℃で1分間プレスした。PETシートからフィルムを剥がし、短冊状に切り出すことにより、SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムを得た。得られたフィルムは水に不溶で水中に浸漬しても安定なフィルムとして取り扱うことが可能であり、自己支持性を有していた。

【0019】

実施例2

(SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムの延伸)
上記で作成したSWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムを延伸機に固定しておき、エチルアルコール蒸気をフィルムにさらすことによりフィルムを膨潤させた。次いで、元の長さに対して3倍長になるまで延伸することにより、SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体の延伸フィルムを得た。
得られたSWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムの構造を透過型X線回折測定により調べた結果、DNAのロッドが37Åの間隔で密にパッキングして、DNAの二重らせん構造が保持された状態でフィルムの延伸方向に配向していることがわかった。

【0020】

実施例3

製造例2で製造したSWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体を使用する以外は、実施例1と同様な方法によりSWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムを得た。次いで、実施例2と同様な方法によりSWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムを得た。

【0021】

得られたSWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムの構造を透過型X線回折測定により調べたところ、DNAのロッド間隔が39Åである以外は実施例2と実質上同一の結果が得られ、実施例2と同様、DNAの二重らせん構造が保持された状態の水不溶性、自己支持性、高配向化SWNT/C₁₀-4G-N⁺/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムが得られた。

【0022】

実施例4

(SWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムの導電性評価)

あらかじめ実施例2で得たSWNT/CTAB/DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムを10分間真空乾燥した。その後、電極間距離が300μmのくし形電極に、エチルアルコールを数滴乗せ、乾きかけるところで、上記のフィルムをフィルムの延伸方向と電場方向が平行になるように乗せ、綿棒で押さえつけることにより圧着した。その上からガラスを被せ、クリップで挟むことによりフィルムを固定化した。このフィルム固定化電極を真空セルにセットし、減圧状態にした。1~2時間後、ポテンションスタットに接続した。定電圧を印加し、定常電流を測定した。印加電圧を変えたときの電流値をI-V直線としてプロットし、傾きから抵抗値の逆数を得て電導度を算出したところ、3.1 S/cmという半導体に匹敵する結果を得た。

使用したDNAの長さは約10μmであるとともに、カーボンナノチューブの長さも数μmであるため、電極間距離300μmのくし形電極を直接橋渡しすることができないことからフィルム内に形成されたカーボンナノチューブの伝導ネットワークが延伸により高配向化された結果、電子伝導が起こると考えられる。

【0023】

実施例5

実施例3で得たフィルムを用いた以外は、実施例4と同様な方法により導電性を測定したところ、使用する脂質を変えても、電導度が1.0 S/cmという実施例4とほぼ同様な結果を得た。フィルム内にカーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成されている結

果であると考えられる。

【0024】

実施例6

製造例3で製造したSWNT/CTAB/PLGA複合体含有マトリックス複合体を使用する以外は、実施例1と同様な方法によりSWNT/CTAB/PLGA複合体含有マトリックス複合体フィルムを得た。次いで、実施例2と同様な方法により、SWNT/CTAB/PLGA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムを得た。次いで、実施例4と同様な方法により導電性を測定したところ、使用するアニオン性高分子を変えても、電導度が 0.2 S/cm という実施例4とほぼ同様な結果を得た。

この結果、アニオン性高分子とカチオン性脂質によるポリイオンコンプレックスをマトリックスにして、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体の伝導ネットワークを形成していることが考えられる。

10

【0025】

実施例7

実施例4で、フィルムの延伸方向と電場方向が垂直になるように乗せた以外は、実施例4と同様な方法により導電性を測定したところ、電導度が 0.1 S/cm という結果を得た。カーボンナノチューブの配向方向とは垂直方向であるため、電導度が実施例4と比較して減少しているものの、フィルムの厚み方向でのカーボンナノチューブの伝導ネットワークの接触が想定されるため、極端な電導度の減少には至らなかった。

20

【0026】

実施例8

実施例1で得たフィルムを使用した以外は、実施例4と同様な方法により導電性を測定したところ、電導度が 0.8 S/cm という結果を得た。フィルム内にカーボンナノチューブの伝導ネットワークが形成されているため、実施例4と同様な結果が得られたものと考えられる。

【0027】

比較例1

鮭白子由来のDNA（ニチロ製、30000塩基対）を 1.0 mg/ml になるように水に溶かし、DNA水溶液を得た。DNAのリン酸アニオン部位に対してCTABを1.1当量含むように調整したCTAB水溶液に、上記のDNA水溶液を滴下した。滴下後、1時間ほど静かに攪拌した。生じた沈殿を、3000rpmで5分間遠心して回収し、回収した複合体を水で2回洗浄し、凍結乾燥することにより、白色粉末を得た。得られた脂質/DNA複合体に対して、SWNTを重量比で2%加え、乳鉢でよく混合した後に、実施例1と同様な方法によりCTAB/DNA複合体とSWNTの混合フィルムを作成し、次いで実施例2と同様な方法により延伸フィルムを得た。得られた延伸フィルムを実施例4と同様な方法により電導度を測定したところ、 0.0008 S/cm という結果を得た。

30

【0028】

比較例2

ポリエチレン粉末を使用し、SWNTを重量比で2%加え、乳鉢でよく混合した後に、実施例1と同様な方法によりポリエチレンとSWNTの混合フィルムを作成した。得られたフィルムの電導度を測定したところ、 0.004 S/cm という結果を得た。

40

比較例1ならび比較例2の結果から、電導度は、カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体を用いた結果と比較して、3~4桁減少した。従って、カーボンナノチューブを単純に混合したフィルムでは、SWNTのバンドルが偏在的に局在し、カーボンナノチューブの電気伝導ネットワークは形成されないと考えられる。

【0029】

【発明の効果】

本発明によれば、導電性フィルム、液晶フィルム、EL素子や太陽電池などの光電変換膜、高分子材料などの機能性フィルムとして利用する水不溶性、自己支持性、高配向化カーボンナノチューブ/脂質/DNA複合体含有マトリックス複合体フィルムおよびその製

50

造方法が提供される。

本発明によれば、カーボンナノチューブをカチオン性脂質水溶液中に超音波照射により分散させて得られるカーボンナノチューブ・脂質分散液を使用することにより少量のカーボンナノチューブを使用してもフィルム内にカーボンナノチューブの伝導ネットワークを形成して、形成されるフィルムの電導度を飛躍的に向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明におけるカーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体の構成を説明するためのイメージ図である。

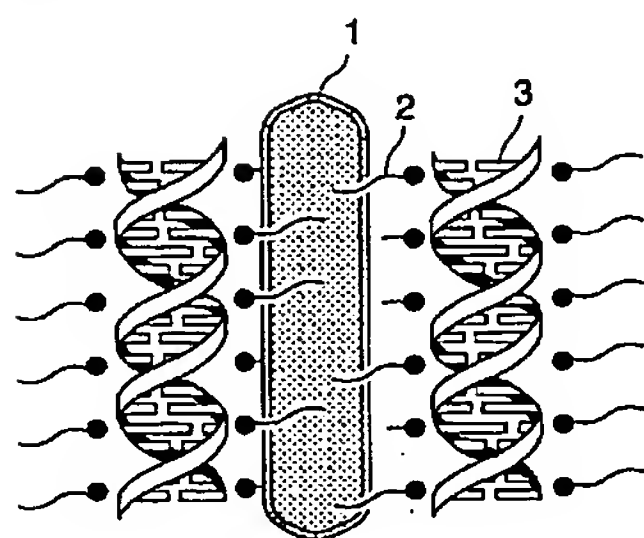
【図2】本発明におけるカーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体含有マトリックス複合体延伸フィルムの構成ならびに導電性測定を説明するためのイメージ断面図である。

10

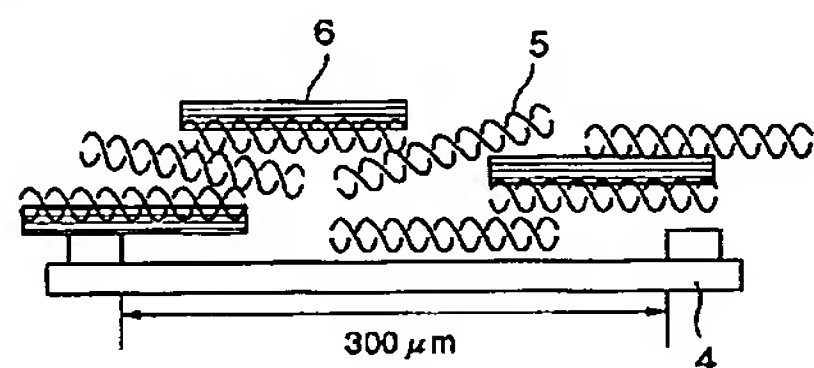
【符号の説明】

- 1 カーボンナノチューブ
- 2 カチオン性脂質
- 3 DNA
- 4 くし形電極
- 5 脂質／DNA複合体
- 6 カーボンナノチューブ／脂質／DNA複合体

【図1】



【図2】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4J002 AA001 AB051 CL061 DA016 EN137 GQ02

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**